

DOCKET NO.: 219581 US

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Norikazu IWASE, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HERewith

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP00/05634

INTERNATIONAL FILING DATE: February 23, 2000

FOR: COSMETICS

REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION

Assistant Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO</u>	<u>DAY/MONTH/YEAR</u>
Japan	11-236826	24 August 1999
Japan	11-267317	21 September 1999

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/JP00/05634. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



22850

(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 1/97)

Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423

34384-01

11.6.1



10/049640

PCT/JP00/05634

日 本 国 特 許 庁

23.08.00

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

1999年 8月24日

REC'D 13 OCT 2000

WIPO

PCT

出 願 番 号

Application Number:

平成11年特許願第236826号

出 願 人

Applicant (s):

花王株式会社

EJU

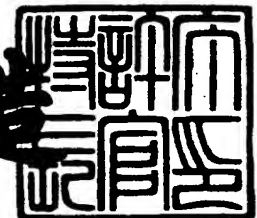
PRIORITY
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2000年 9月29日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2000-3078607

【書類名】 特許願
【整理番号】 P03401108
【提出日】 平成11年 8月24日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 A61K 7/00
A61K 7/48

【発明者】

【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内
【氏名】 岩瀬 範和

【発明者】

【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内
【氏名】 田中 規弘

【発明者】

【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内
【氏名】 佐藤 広隆

【発明者】

【住所又は居所】 栃木県芳賀郡市貝町赤羽 2 6 0 6 花王株式会社研究所
内
【氏名】 堀 公彦

【発明者】

【住所又は居所】 栃木県芳賀郡市貝町赤羽 2 6 0 6 花王株式会社研究所
内
【氏名】 野々村 真美

【特許出願人】

【識別番号】 000000918
【氏名又は名称】 花王株式会社

【代理人】

【識別番号】 100068700
【弁理士】

【氏名又は名称】 有賀 三幸

【選任した代理人】

【識別番号】 100077562

【弁理士】

【氏名又は名称】 高野 登志雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100096736

【弁理士】

【氏名又は名称】 中嶋 俊夫

【選任した代理人】

【識別番号】 100101317

【弁理士】

【氏名又は名称】 的場 ひろみ

【選任した代理人】

【識別番号】 100106909

【弁理士】

【氏名又は名称】 棚井 澄雄

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011752

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 化粧品

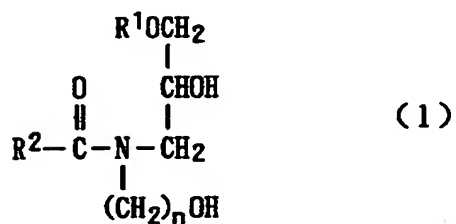
【特許請求の範囲】

【請求項 1】 角質層細胞間脂質及びその類似物質から選ばれる 1 種以上と、テルペン系成分を含有する化粧品。

【請求項 2】 角質層細胞間脂質及びその類似物質が、天然セラミド、セラミド類似物質、及びステロイド類の脂肪酸エステルから選ばれるものである請求項 1 記載の化粧品。

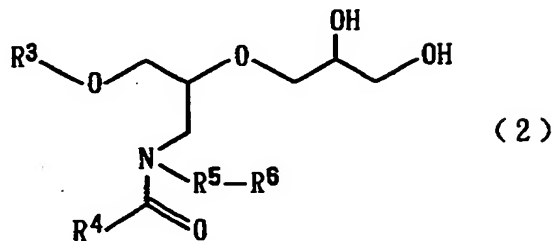
【請求項 3】 角質層細胞間脂質が、一般式 (1) ~ (5)

【化 1】



(式中、 R^1 は炭素数 10 ~ 26 の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和の炭化水素基を示し、 R^2 は炭素数 9 ~ 25 の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和の炭化水素基を示し、 n は 3 ~ 6 の数を示す)

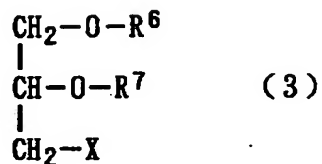
【化 2】



(式中、 R^3 及び R^4 は同一又は異なって、炭素数 1 ~ 4 のヒドロキシ化されていてもよい炭化水素基を示し、 R^5 は炭素数 1 ~ 6 の直鎖若しくは分岐鎖のアルキレン基又は単結合を示し、 R^6 は水素原子、炭素数 1 ~ 12 の直鎖若しくは分岐鎖のアルコキシ基又は 2, 3 - ジヒドロキシプロピルオキシ基を示す。ただし、 R^5

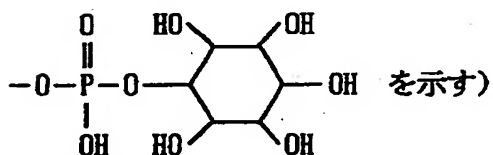
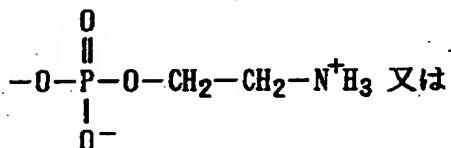
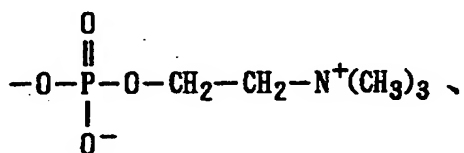
が単結合のときは、 R^6 は水素原子である)

【化 3】

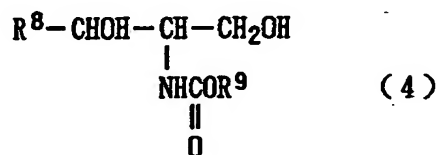


(式中、 R^6 及び R^7 のいずれか一方は $-\text{C}(=\text{O})-\text{C}_{17}\text{H}_{35}$ 又は $-\text{C}(=\text{O})-\text{C}_{15}\text{H}_{31}$

を示し、他方は水素原子を示す。Xは

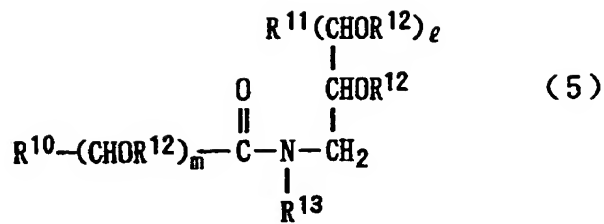


【化 4】



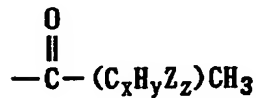
(式中、 R^8 は炭素数 11～21 のアルキル基又はアルケニル基を示し、 R^9 は炭素数 3～30 の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和の炭化水素基を示す)

【化 5】



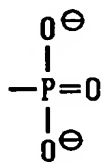
[R¹⁰は炭素数 1～49 の直鎖若しくは分岐鎖の飽和若しくは不飽和のヒドロキシル化、リン酸化若しくは硫酸化されていてもよい脂肪族炭化水素基、又はサブ置換基-(C_aH_b)-O-Y (Yは水素原子又は次式

【化 6】



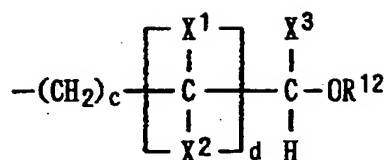
(Zは-OH、-OP₁、-OSO₃⁻、又はエポキシ酸素を示し、xは12～20の数を示し、yは20～40の数を示し、zは0～4の数を示す)で表わされる炭素数14～22の脂肪酸残基を示し、aは7～49の数、bは10～98の数を示す)を示し；R¹¹は炭素数1～28の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和のヒドロキシル化、リン酸化若しくは硫酸化されていてもよい脂肪族炭化水素基を示し；R¹²は水素原子、糖残基、硫酸残基又はリン酸残基P₁ (P₁は基：

【化 7】



を示す)を示し；R¹³は水素原子又はサブ置換基

【化 8】



(X^1 、 X^2 及び X^3 はそれぞれ水素原子又は炭素数 1～5 のヒドロキシル化されていてもよいアルキル基を示し、 c は 0～4 の数を示し、 d は 0 又は 1 を示し、 R^{12} は前記と同じ意味を示す) を示し； 1 及び m は 0 又は 1 を示し、 R^{10} が炭素数 9～49 の場合には、 $1+m$ は 1 又は 2 である]

で表されるセラミド類似物質である請求項 1 又は 2 記載の化粧品。

【請求項 4】 テルペン系成分が、テルペン系炭化水素又はテルペン系アルコールである請求項 1～3 のいずれか 1 項記載の化粧品。

【請求項 5】 テルペン系成分が、テルペン系炭化水素又はテルペン系アルコールを含有する植物の抽出物、水蒸気蒸留物又は圧搾物である請求項 1～4 のいずれか 1 項記載の化粧品。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、肌荒れやかさつきを改善する効果が高く、乾燥肌や敏感肌等の肌質を改善する効果を有する化粧品に関する。

【0002】

【従来の技術】

角質層細胞間脂質のひとつであるセラミドは、皮膚の水分保持能及びバリア機能に重要な役割を果たしていることが周知であり、特に乾燥肌や敏感肌の人の角質層には、セラミド含量が少ないことが報告されている。このため、天然セラミドやセラミド類似物質を含有する皮膚外用剤を塗布して、減少した角質層のセラミドを補い、前記皮膚機能を改善することが試みられている（特開昭62-228048号、特開昭63-216812号、特開平3-66604号、特開平3-193754号、特開平4-282304号等）。

しかし、乾燥肌や敏感肌の人の場合には、肌荒れやかさつきに対する改善効果が持続せず、特に肌が敏感であるために、単純な刺激に対してもかゆみや湿しんなどが発生したり、精神的なストレスが重なったときなどに皮膚トラブルを起こしやすいなど、乾燥肌や敏感肌に対して有効な化粧品は未だ知られていない。

【0003】

一方、グアイオールやセドロール等のセスキテルペン化合物が、メラニン産生抑制作用を有し、これを配合した皮膚外用剤も知られている（特開平10-36246号、特開平10-36247号）。

また、生理活性物質とセスキテルペン類と水溶性多価アルコールとを配合してなる皮膚外用組成物（特開平6-128120号）も知られているが、ここで用いられる生理活性物質は、皮膚を透過して皮膚下部組織に吸収されるか、全身血流中に移行して作用するものであり、表皮、特に角質層に留まって、肌荒れやかさつきを改善するものではなかった。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、乾燥肌や敏感肌においても肌荒れやかさつきを改善する効果が高い化粧料を提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、角質層細胞間脂質またはその類似物質とテルペン系成分を組合わせて用いることにより、乾燥肌や敏感肌においても肌荒れやかさつきを改善する効果が高く、肌質を改善する効果を有する化粧料が得られることを見出した。

【0006】

本発明は、角質層細胞間脂質及びその類似物質から選ばれる1種以上と、テルペン系成分を含有する化粧料を提供するものである。

【0007】

【発明の実施の形態】

本発明で用いる角質層細胞間脂質としては、天然セラミド、セラミド類似物質、ステロイド類、ステロイド類の脂肪酸エステル、脂肪酸、トリグリセリド、セ

レブロシド、リン脂質等が挙げられる。これらのうち、天然セラミド、セラミド類似物質、ステロイド類の脂肪酸エステルが好ましい。

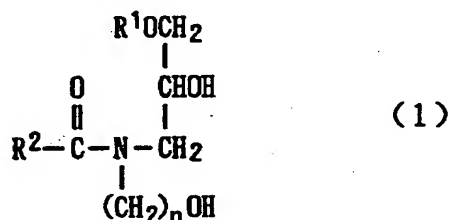
天然セラミドとしては、人皮脂中に存在する公知のタイプⅠ～タイプⅦ（皮膚臨床 35、1147～1161（1993）；Angew. Chem. Int. Ed., 38 巻、1532～1568（1999）等）の 1 種以上を用いるのが好ましい。

【0008】

セラミド類似物質としては、例えば特開昭63-216812号、特開平8-319263号、特開平3-66604号、特開平3-193754号、特開平4-282304号等に記載されているもので、次の一般式（1）～（5）で表されるものが挙げられる。

【0009】

【化9】

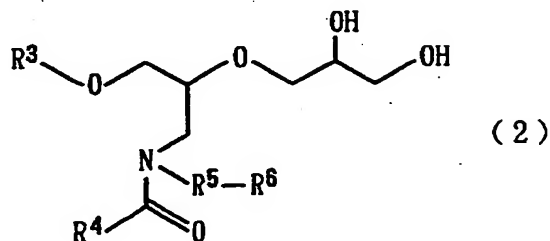


【0010】

（式中、 R^1 は炭素数 10～26 の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和の炭化水素基を示し、 R^2 は炭素数 9～25 の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和の炭化水素基を示し、 n は 3～6 の数を示す）

【0011】

【化10】

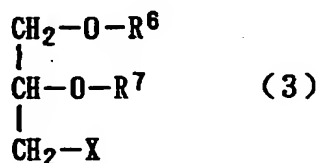


（式中、 R^3 及び R^4 は同一又は異なって、炭素数 1～4 のヒドロキシ化されてい

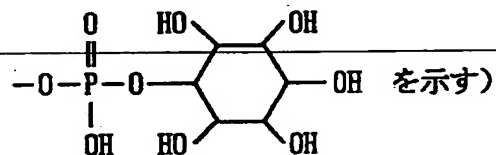
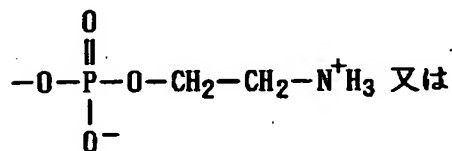
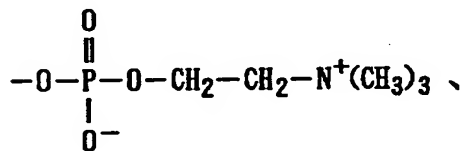
てもよい炭化水素基を示し、 R^5 は炭素数 1 ～ 6 の直鎖若しくは分岐鎖のアルキレン基又は単結合を示し、 R^6 は水素原子、炭素数 1 ～ 1 2 の直鎖若しくは分岐鎖のアルコキシル基又は 2, 3 - ジヒドロキシプロピルオキシ基を示す。ただし、 R^5 が単結合のときは、 R^6 は水素原子である)

【 0 0 1 2 】

【 化 1 1 】

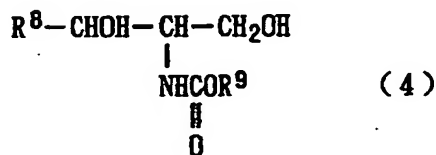


(式中、 R^6 及び R^7 のいずれか一方は $-\text{C}-\text{C}_{17}\text{H}_{35}$ 又は $-\text{C}-\text{C}_{15}\text{H}_{31}$ を示し、他方は水素原子を示す。Xは



【 0 0 1 3 】

【 化 1 2 】

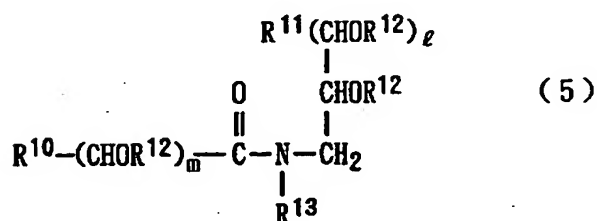


【 0 0 1 4 】

(式中、 R^8 は炭素数11～21のアルキル基又はアルケニル基を示し、 R^9 は炭素数3～30の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和の炭化水素基を示す)

【0015】

【化13】

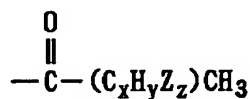


【0016】

(R^{10} は炭素数1～49の直鎖若しくは分岐鎖の飽和若しくは不飽和のヒドロキシル化、リン酸化若しくは硫酸化されていてもよい脂肪族炭化水素基、又はサブ置換基 $-(C_aH_b)-O-Y$ (Y は水素原子又は次式

【0017】

【化14】

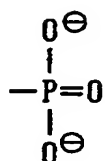


【0018】

(Z は $-OH$ 、 $-OP_1$ 、 $-OSO_3^-$ 、又はエポキシ酸素を示し、 x は12～20の数を示し、 y は20～40の数を示し、 z は0～4の数を示す)で表わされる炭素数14～22の脂肪酸残基を示し、 a は7～49の数、 b は10～98の数を示す)を示し； R^{11} は炭素数1～28の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和のヒドロキシル化、リン酸化若しくは硫酸化されていてもよい脂肪族炭化水素基を示し； R^{12} は水素原子、糖残基、硫酸残基又はリン酸残基 P_1 (P_1 は基：

【0019】

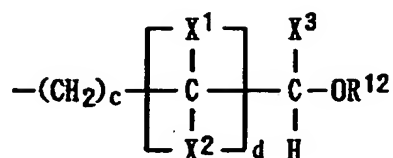
【化 15】



を示す) を示し; R^{13} は水素原子又はサブ置換基

【0020】

【化 16】



(X^1 、 X^2 及び X^3 はそれぞれ水素原子又は炭素数1～5のヒドロキシル化されていてもよいアルキル基を示し、 c は0～4の数値を示し、 d は0又は1を示し、 R^{12} は前記と同じ意味を示す) を示し; l 及び m は0又は1を示し、 R^{10} が炭素数9～49の場合には、 $l+m$ は1又は2である]

【0021】

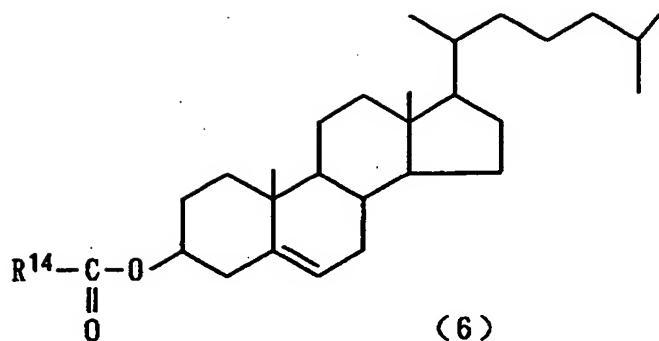
これらのうち、特に一般式(1)又は(2)で表されるセラミド類似物質が好ましい。

【0022】

また、ステロイド類の脂肪酸エステルとしては、次式(6)

【0023】

【化 17】



【0024】

(式中、 R^{14} は炭素数1～25の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和のヒドロキシル基が置換していてもよい炭化水素基を示す)

で表されるコレステロール脂肪酸エステルが好ましい。

【0025】

角質層細胞間脂質又はその類似物質は、1種以上を用いることができ、全組成中に0.01～60重量%、特に0.05～40重量%、更に0.1～20重量%配合するのが、使用感に優れるので好ましい。

【0026】

テルペン系成分としては、モノテルペン、セスキテルペン、ジテルペン等のテルペン系炭化水素、テルペン系アルコール、テルペン系アルデヒド、テルペン系ケトン等が挙げられ、特にテルペン系炭化水素、テルペン系アルコールが好ましい。

テルペン系炭化水素としては、 α -ピネン、 β -ピネン、カンフェン、リモネン、ミルセン、 β -カリオフィレン等が挙げられ；テルペン系アルコールとしては、リナロール、ゲラニオール、ネロール、シトロネロール、ラバンズロール、ミルセノール、 α -テルピネオール、1-メントール、ボルネオール、ノポール、イソボルニルシクロヘキサノール、ファルネソール、ネロリドール、サンタロール、セドロール、グアイオール、パチペロール、パチュリアルコール等が挙げられる。

【0027】

また、本発明においては、これらのテルペン系成分を含有する植物の抽出物、水蒸気蒸留物又は圧搾物等を使用することもでき、好ましい。

このような植物としては、例えばセダー、パチョリ、サンダルウッド、ベチバー、ショウガ、クミン、ミル、コショウ、ローズマリー、ペパーミント、バラ、ジャスミン、カノコソウ、スイカズラ、タイム、茶、グアイヤックウッド等が挙げられ、特にセダー、パチョリ、サンダルウッド、ベチバー、ショウガ、コショウ、ローズマリー、ペパーミント、バラ、スイカズラ、グアイヤックウッドが好ましい。

これらの植物は、常法により抽出、水蒸気蒸留、圧搾等すれば良く、更にこれら留分を分画して用いたり、更に精製した精油を用いたり、アセチル化等の反応により誘導化したものを用いることもできる。

【0028】

テルペン系成分は、1種以上を用いることができ、特に2種以上組合わせて用いたり、2種以上のテルペン系成分を含有する植物抽出物を用いるのが、肌質改善効果がより高くなるので好ましい。

テルペン系成分は、全組成中に1ppm以上、特に0.001～20重量%、更に1.0～10重量%となるように配合するのが好ましい。

【0029】

本発明の化粧品には、前記成分以外に、通常の化粧品に用いられる成分、例えば界面活性剤、油分、アミノ酸類、他の保湿剤、粉体、紫外線吸収剤、ゲル化剤、抗炎症剤、抗酸化剤、pH調整剤、香料等を、適宜配合できる。

【0030】

本発明の化粧品は、通常の方法により製造でき、可溶化系、乳化系、粉末分散可溶化系、粉末分散乳化系、粉末分散油等の任意の剤型にできる。また、化粧水、乳液、クリーム、美容液、化粧油等のスキンケア化粧品、ファンデーション、パウダー、口紅、ほほ紅、アイシャドウ、ネイルエナメル等のメイクアップ化粧品などの皮膚化粧品として好適である。

【0031】

【発明の効果】

本発明の化粧料は、肌荒れやかさつきを改善する効果が高く、乾燥肌や敏感肌の肌質を改善する効果を有するものである。

【0032】

【実施例】

実施例 1

表 1 に示す組成の乳化化粧料を常法により製造し、肌荒れ・かさつき改善効果、及び肌質改善効果を評価した。結果を表 1 に併せて示す。

【0033】

(評価方法)

(1) 肌荒れ・かさつき改善度：

肌荒れやかさつきのよくある女性（20～30歳）10名のパネラーにより、各化粧料を1日2回（朝と夜）1週間使用したとき、肌荒れやかさつきの状態を使用前と比較して、以下の基準で評価した。結果を平均値として示した。

- 5；使用前より著しく良くなった。
- 4；使用前よりかなり良くなった。
- 3；使用前よりやや良くなった。
- 2；使用前とあまり変わらなかった。
- 1；使用前と全然変わらなかった。
- 0；悪化した。

【0034】

(2) 肌質改善度：

肌が敏感であるという自覚のある女性（20～30歳）10名のパネラーにより、各化粧料を1日2回（朝と夜）1ヶ月間使用したとき、日常の生活の中での肌荒れやかさつきの起こりやすさを、使用前と比較して、以下の基準で評価した。結果を平均値として示した。

- 5；使用前より著しく肌荒れやかさつきが起こりにくい。
- 4；使用前よりかなり肌荒れやかさつきが起こりにくい。
- 3；使用前よりやや肌荒れやかさつきが起こりにくい。
- 2；使用前とあまり変わらず、肌荒れやかさつきが時々起こる。

1 ; 使用前と変わらず、肌荒れやかさつきが良く起こる。

0 ; 使用前より肌荒れやかさつきが起こりやすくなった。

【0035】

【表1】

成 分 (重量%)	本 発 明 品				比 較 品		
	1	2	3	4	1	2	3
セラミド類似物質 ^{*1}	3	3	3	3	10	—	—
パチョリオイル ^{*2}	5	—	—	2.5	—	5	—
セダーウッドオイル ^{*3}	—	5	—	2.5	—	5	—
セドロール	—	—	5	—	—	—	—
イソステアリン酸セチルヒメチル	2	2	2	2	2	2	2
リルチタンモノステアレート	2	2	2	2	2	2	2
2-オクチルデシリステート	10	10	10	10	10	10	10
スクワラン	5	5	5	5	5	5	5
グリセリン	5	5	5	5	5	5	5
精製水	適量	適量	適量	適量	適量	適量	適量
肌荒れ・かさつき改善度	4.6	4.8	4.5	5.0	2.5	1.8	0.8
肌質改善度	4.6	4.0	3.6	4.9	2.0	2.5	1.0

* 1 : N-(3-ヘキサデシル-2-ヒドロキシプロピル)-N'-2-ヒドロキシエチルカミド

* 2 : パチョリアルコールを30重量%及びカリオフィレンを20重量%含有する

* 3 : セドロールを24重量%含有する

【0036】

実施例 2 (化粧水)

以下に示す組成の化粧水を常法により製造した。

【表2】

(成分)	(重量%)
ベチバーオイル (ベチペロールを60重量%含有)	2. 0
セラミド類似物質 ^{*1}	1. 0
ポリオキシエチレン(20)ソルピタン	
モノラウリン酸エステル	1. 5
グリセリン	2. 0
パラベン	0. 1
精製水	残余

【0037】

実施例3 (O/W型乳液)

以下に示す組成のO/W型乳液を常法により製造した。

【表3】

(成分) (重量%)

サンダルウッドオイル (サンタロールを73重量%含有)

2.0

セチルアルコール

1.0

ワセリン

2.0

スクワラン

6.0

ジメチルポリシロキサン

2.0

グリセリン

2.0

セラミド類似物質^{*4}

1.0

ポリオキシエチレン(10)

モノオレイン酸エステル

1.0

グリセロールモノステアリン酸エステル

1.0

パラベン

0.2

精製水

残余

*4 : N-(3-ヘキサデシロキシ-2-ヒドロキシプロピル)-N-2-ヒドロキシエチ

ルヘキサデカナミド

【0038】

実施例4 (W/O型クリーム)

以下に示す組成のW/O型クリームを常法により製造した。

【表4】

(成分) (重量%)

グアイヤックウッドオイル

(グアイオールを64重量%含有)

2.0

ジメチルポリシロキサン

10.0

メチルフェニルポリシロキサン

3.0

オクタメチルシクロテトラシロキサン	1 2. 0
ポリオキシアルキレン変性シリコーン	5. 0
1, 3 - ブチレングリコール	6. 0
セラミド類似物質 ^{*5}	1. 2
パラベン	0. 2
香料	微量
精製水	残余

* 5 : N-[2-(2,3-ジヒドロキシプロピルオキシ)-3-ヘキサデシロキシプロピ
ル]-N-3-メトキシプロピルテトラデカナミド

【 0 0 3 9 】

実施例 2 ~ 4 で得られた化粧料はいずれも、肌荒れやかさつきを改善する効果
が高く、乾燥肌や敏感肌等の肌質を改善する効果を有するものであった。

【書類名】 要約書

【要約】

【解決手段】 角質層細胞間脂質及びその類似物質から選ばれる 1 種以上と、テルペン系成分を含有する化粧品。

【効果】 肌荒れやかさつきを改善する効果が高く、乾燥肌や敏感肌の肌質を改善する効果を有する。

【選択図】 なし

特平 11-236826

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000000918]

1. 変更年月日 1990年 8月24日

 [変更理由] 新規登録

 住 所 東京都中央区日本橋茅場町1丁目14番10号

 氏 名 花王株式会社